PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

11-241054

(43) Date of publication of application: 07.09.1999

(51)Int.CI.

C09J 9/02

H01B 5/00

H01B 5/16

H01L 21/60 H01R 11/01

(21)Application number: 10-300763

(71)Applicant: SONY CHEM CORP

(22)Date of filing:

22.10.1998

(72)Inventor: YAMADA YUKIO

SAITO MASAO

SHINOZAKI JUNJI

TAKECHI MOTOHIDE

(30)Priority

Priority number: 09296005

Priority date: 28.10.1997

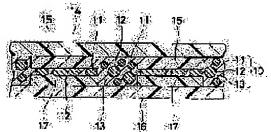
Priority country: JP

(54) ANISOTROPICALLY CONDUCTIVE ADHESIVE AND FILM FOR ADHESION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain an anisotropically conductive adhesive which exhibits a high electric conduction reliability and a high electric insulation reliability even when an IC with a small bump or pitch is connected by dispersing, in an insulating adhesive, conductive particles which comprise at least two kinds of conductive particles different in average particle size and coated with an insulating resin insoluble in the insulating adhesive.

SOLUTION: A film 10 for anisotropic conductive adhesion is prepd. by dispersing conductive particles 11 having a smaller average particle size and conductive particles 12 having a larger average particle size in an insulating adhesive 13. An IC chip 14 forms a bump 15; and a circuit board 16 forms a wiring pattern 17. The conductive particles 11. 12 are formed by coating the surfaces of polymeric core particles with a metal plating layer and then with an insulating resin layer. The film 10 for adhesion in the state of being inserted is thermally press bonded under heating and pressure. The insulating resin layer of the larger-size particle 12 between the bump 15 and the wiring pattern 17 is softened, melted, ruptured, and excluded, and the film becomes electrically conductive through the metal plating layer. The film becomes electrically conductive in the same way at the site of the smaller size particle, too.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

06.10.1999

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

Kind of final disposal of application other than the

examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

3296306

[Date of registration]

12.04.2002

[Number of appeal against examiner's decision of

rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision

of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出顧公開番号

特開平11-241054

(43)公開日 平成11年(1999)9月7日

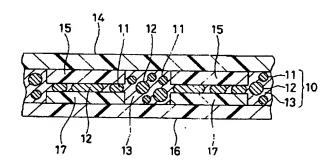
| (51) Int.Cl. ⁶ | 識別記号 | FI |
|---------------------------|--------------------|------------------------------|
| C 0 9 J 9/02 | | C 0 9 J 9/02 |
| H01B 5/00 | | H01B 5/00 K |
| 5/16 | | 5/16 |
| H01L 21/60 | 3 1 1 | H01L 21/60 311S |
| H01R 11/01 | | H01R 11/01 H |
| | • | 審査請求 未請求 請求項の数13 OL (全 11 頁) |
| (21)出願番号 | 特顏平10-300763 | (71)出顧人 000108410 |
| | | ソニーケミカル株式会社 |
| (22)出顧日 | 平成10年(1998)10月22日 | 東京都中央区日本橋室町1丁目6番3号 |
| | | (72)発明者 山田 幸男 |
| (31)優先権主張番号 | 特願平9-296005 | 栃木県鹿沼市さつき町12-3 ソニーケミ |
| (32)優先日 | 平 9 (1997)10月28日 | カル株式会社内 |
| (33)優先権主張国 | 日本(JP) | (72)発明者 斉藤 雅男 |
| | | 栃木県鹿沼市さつき町12-3 ソニーケミ |
| | | カル株式会社内 |
| | | (72)発明者 篠崎 潤二 |
| | | 栃木県鹿沼市さつき町12-3 ソニーケミ |
| | | カル株式会社内 |
| | | (74)代理人 弁理士 柳原 成 |
| | | 最終頁に続く |

(54) 【発明の名称】 異方導電性接着剤および接着用膜

(57)【要約】

【課題】 バンプまたはピッチの小さい I Cを接続する場合でも、ショートや回路パターンへのダメージを与えることなく、高い導通信頼性と高い絶縁信頼性が得られ、しかも低コストで容易に接続することができる異方導電性接着剤を提供する。

【解決手段】 絶線性接着剤13中に絶縁被覆された平均粒径の異なる導電粒子11、12が分散した異方導電性接着剤。



- 10 異方導電性接着用膜
- 11 平均位径の小さい導電位子
- 12 平均粒径の大きい導電粒子
- 13 絕緣性接着剂
- 14 IC+>プ
- 15 パンプ
- 16 回路基板
- 17 配線パターン

【特許請求の範囲】

【請求項1】 絶縁性接着剤中に導電粒子が分散された 異方導電性接着剤であって、

前配導電粒子は平均粒径が異なる2種以上の導電粒子であり、かつこれらの導電粒子は絶縁性接着剤に不溶な絶縁性樹脂で被覆された絶縁被覆導電粒子であることを特徴とする異方導電性接着剤。

【請求項2】 平均粒径が異なる2種以上の導電粒子が 加圧により変形する粒子であることを特徴とする請求項 1 記載の異方導電性接着剤。

【請求項3】 平均粒径の小さい導電粒子の硬度が、平均粒径の大きい導電粒子と同等か、それ以上の硬度を有することを特徴とする請求項1または2記載の異方導電性接着剤。

【請求項4】 平均粒径の小さい導電粒子のK値が35 Okgf/mm²以上、平均粒径の大きい導電粒子のK 値が450kgf/mm²以下であり、平均粒径の小さ い導電粒子のK値が平均粒径の大きい導電粒子のK値よ り相対的に大きいことを特徴とする請求項1ないし3の いずれかに記載の異方導電性接着剤。

【請求項5】 平均粒子径の小さい導電粒子の含有個数 が平均粒径の大きい導電粒子の含有個数より多いことを 特徴とする請求項1ないし4のいずれかに配載の異方導 電性接着剤。

【請求項6】 平均粒径が 3 ± 0 . 5μ mと 5 ± 0 . 5μ mの2種類の導電粒子が分散されてなることを特徴とする請求項 1 ないし5のいずれかに記載の異方導電性接着剤。

【請求項7】 ICチップと回路基板とを接続するIC チップ接続用である請求項1ないし6のいずれかに記載 の異方導電性接着剤。

【請求項8】 Ι C チップに形成された 4 0 0 0 μ m² 以下の微小パンプと回路基板とを接続する Ι C チップ接続用である請求項 1 ないし 7 のいずれかに記載の異方導電性接着剤。

【請求項9】 請求項1ないし8のいずれかに記載の異 方導電性接着剤からなる異方導電性接着用膜。

【請求項10】 ICチップと回路基板とを接続するICチップ接続用である請求項9記載の異方導電性接着用 随。

【請求項11】 Ι C チップに形成された4000μm ²以下の微小パンプと回路基板とを接続する I C チップ 接続用である請求項9配載の異方導電性接着用膜。

【請求項12】 単位面積当りの膜中に含有される平均 粒径の小さい導電粒子の含有量が30000~8000 0個/mm²の範囲であり、平均粒径の大きい導電粒子 の含有量が10000~30000個/mm²の範囲で あることを特徴とする請求項9ないし11のいずれかに 記載の異方導電性接着用膜。

【請求項13】 膜の厚みが、接続を行うICチップの

バンプ高さと回路基板上の配線パターンの高さとを合せた厚みに対して1~3倍である請求項9ないし12のいずれかに配載の異方導電性接着用膜。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、相対峙する回路を 電気的に接続すると共に接着固定するために用いられる 回路接続用の異方導電性接着剤およびこれからなる異方 導電性接着用膜に関し、特に I C チップを直接回路に接 続する、いわゆるフリップチップポンディングに好適に 用いられる異方導電性接着剤およびこれからなる異方導 電性接着用膜に関する。

[0002]

【従来の技術】電子部品の軽量薄型化に伴い、これら電子部品に適用する実装方式として、ICチップを直接実装するベアチップ実装、またはフリップチップボンディング方式が用いられている。回路基板上にICチップを直接実装する方法としては、1)IC電極と回路端子を金線で接続するワイヤーボンディング方式、2)IC電極と回路端子を半田リフローで接続するフェイスダウン方式、3)ICチップにバンプを形成して、異方導電性接着剤により接続する方式等があげられる。これらの中では、特に異方導電性接着剤(異方導電性接着剤を剥離フィルム上に塗布して加熱・乾燥してフィルム状にした異方導電性接着用膜を含む)方式が、手軽で導通信頼性が高く、しかも封止の必要がないため、最小のコストで高密度実装が可能になる等のメリットがあり、最近広く用いられるようになっている。

【0003】しかしながら、ますますファインピッチ化、および I Cバンプ(突起電極)の面積の微小化に伴い、異方導電性接着剤中に含まれる導電粒子の粒径を小さくする必要があり、また導通信頼性を向上させるために導電粒子の配合量を増加させる傾向になっている。しかしながら、導電粒子の粒径を小さくすると二次凝集により接続のバラツキやパターン間のショートが問題となり、配合量を増すとやはりパターン間のショートが問題となってくる。

【0004】この対策として、導電粒子の表面を絶縁層で被覆した絶縁コート粒子を用いたり、異方導電性接着用膜を多層化して接続の際に電極からの導電粒子の流出を防止する試みもなされている。しかしながら絶縁コート粒子を用いる場合、その硬度、弾性によって長期間の導通信頼性が低下することが懸念される。また絶縁コート粒子としては平均粒径が5 μ m程度のものが主に使用されているが、この粒子の配合量を増加すると、例えば膜当り4000個 ℓ mm²程度配合すると、バンプ間が10 ℓ m以下のピッチの小さいファインピッチICの接続では絶縁信頼性を維持するのが困難になる。

【0005】一方、多層化した場合、導電粒子の配合量を増加することができ、例えば平均粒径が3μm程度の

粒径が小さい導電粒子を膜当り8000個/mm²程度まで配合することができるが、この場合高精度のバンプを作成する必要があるほか、接続する際のプレス精度を厳しく管理する必要があるなど、コスト高になる。

【0006】ところで特開平4-174980号には、加熱により変形する導電粒子の表面を熱可塑性絶縁層で被覆した絶縁被覆粒子と、この絶縁被覆粒子より硬質である厚み制御粒子とを、加熱により塑性流動性を示す絶縁性接着剤中に含有させた回路の接続部材が記載されている。

【0007】しかしながら、この接続部材は、厚み制御粒子が絶縁体の場合、この厚み制御粒子は導通には関与しないので高い導通信頼性が得られにくい。また厚み制御粒子が導体の場合は、配合量が多くなると短絡が起こり、絶縁信頼性が得られない。さらに厚み制御粒子は変形しないため、粒径にパラツキがある場合、最も大粒径の粒子によって厚みが制御され、これより小粒径の粒子は導通に関与しないため導通信頼性にも欠ける。

【0008】また特開平9-102661号には、特定の圧縮硬さ(K値)と特定の変形回復率を有する導電性 微粒子を用いた電極間の導電接続方法が記載されている。しかしながら、上記導電性微粒子を用いた場合でも、ファインピッチICの接続においては、高い導通信 頼性と高い絶縁信頼性とを得るのは難しい。

[0009]

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、バンプまたはピッチの小さい I Cを接続する場合でも、ショートや回路パターンへのダメージを与えることなく、高い導通信頼性と高い絶縁信頼性が得られ、しかも低コストで容易に接続することができる異方導電性接着剤、およびそれからなる異方導電性接着用膜を提供することである。

[0010]

【課題を解決するための手段】本発明は次の異方導電性 接着剤およびそれからなる異方導電性接着用膜である。

- (1) 絶縁性接着剤中に導電粒子が分散された異方導 電性接着剤であって、前記導電粒子は平均粒径が異なる 2種以上の導電粒子であり、かつこれらの導電粒子は絶 緑性接着剤に不溶な絶縁性樹脂で被覆された絶縁被覆導 電粒子であることを特徴とする異方導電性接着剤。
- (2) 平均粒径が異なる2種以上の導電粒子が加圧により変形する粒子であることを特徴とする上記(1)記載の異方導電性接着剤。
- (3) 平均粒径の小さい導電粒子の硬度が、平均粒径の大きい導電粒子と同等か、それ以上の硬度を有することを特徴とする上記(1)または(2)記載の異方導電性接着剤。
- (4) 平均粒径の小さい導電粒子のK値が350kg f/mm²以上、平均粒径の大きい導電粒子のK値が4 50kg f/mm²以下であり、平均粒径の小さい導電

粒子のK値が平均粒径の大きい導電粒子のK値より相対 的に大きいことを特徴とする上記(1)ないし(3)の いずれかに記載の異方導電性接着剤。

- (5) 平均粒子径の小さい導電粒子の含有個数が平均 粒径の大きい導電粒子の含有個数より多いことを特徴と する上記(1)ないし(4)のいずれかに記載の異方導 電性接着剤。
- (6) 平均粒径が 3 ± 0 . 5μ mと 5 ± 0 . 5μ mの 2種類の導電粒子が分散されてなることを特徴とする上 記(1) ないし(5) のいずれかに記載の異方導電性接 着剤。
- (7) ICチップと回路基板とを接続するICチップ接続用である上記(1)ないし(6)のいずれかに記載の異方導電性接着剤。
- (8) ICチップに形成された $4000 \mu m^2$ 以下の 微小パンプと回路基板とを接続するICチップ接続用で ある上記(1)ないし(7)のいずれかに記載の異方導 電性接着剤。
- (9) 上記(1)ないし(8)のいずれかに記載の異 方導電性接着剤からなる異方導電性接着用膜。
- (10) ICチップと回路基板とを接続するICチップ接続用である上記(9)記載の異方導電性接着用膜。
- (11) ICチップに形成された4000μm²以下の微小パンプと回路基板とを接続するICチップ接続用である上記(9)記載の異方導電性接着用膜。
- (12) 単位面積当りの膜中に含有される平均粒径の小さい導電粒子の含有量が3000~8000個/mm²の範囲であり、平均粒径の大きい導電粒子の含有量が1000~3000個/mm²の範囲であることを特徴とする上記(9)ないし(11)のいずれかに記載の異方導電性接着用膜。
- (13) 膜の厚みが、接続を行うICチップのバンプ 高さと回路基板上の配線パターンの高さとを合せた厚み に対して1~3倍である上配(9)ないし(12)のい ずれかに配載の異方導電性接着用膜。

【 O O 1 1 】本発明で用いる絶縁性接着剤としては、各種の熱硬化性樹脂、熱可塑性の樹脂やゴムを用いることができる。接続後の信頼性の点から熱硬化性の樹脂が好ましい。熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、ジアリルフタレート樹脂、ボスマレイミドトリアジン樹脂、ポリエステル樹脂、ポリウレタン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド樹脂またはポリイミド樹脂等の合成樹脂;ヒドロキシル基、カルボキシル基、ビニル基、アミノ基またはエポキシ基等の官能基を含むゴムやエラストマなどを用いることができる。これらの中でも特にエポキシ樹脂が各種特性の点で好ましく使用できる。

【0012】エポキシ樹脂としては、ビスフェノール型 エポキシ樹脂、エポキシノボラック樹脂または分子内に 2個以上のオキシラン基を有するエポキシ化合物等が使 用できる。これらのエポキシ樹脂は、不純物イオン特に 塩素イオンが50ppm以下の高純度品を用いることが 好ましい。

【0013】本発明で用いる導電粒子は、金属粒子または高分子核材粒子を導電材で被覆した導電被覆粒子などの導電性の粒子を、前記絶縁性接着剤に不溶な絶縁性樹脂で被覆した絶縁被覆導電粒子である。上記金属粒子としては、ニッケルまたは半田等の金属粒子があげられる。

【0014】前記導電被優粒子を構成する高分子核材粒子としては、エポキシ樹脂、スチレン樹脂、シリコーン樹脂、アクリル樹脂、アクリル/スチレン樹脂(アクリレートとスチレンとの共重合体)、ポリオレフィン樹脂、メラミン樹脂またはペンゾグアナミン樹脂等の合成樹脂、ジビニルベンゼン架橋体;NBRまたはSBRできる。これらの中ではスチレン樹脂、アクリル樹脂、アクリル/スチレン樹脂、ベンゾグアナミン樹脂、ジビニルベンゼン架橋体が好ましい。高分子核材粒子の硬度または弾性等は特に制限されず、適宜所望する硬度または弾性等を有するものを選択することができる。

【0015】上記高分子核材粒子を被覆する導電材としては、ニッケル、金、鋼等の金属が1種または2種以上使用できる。導電材は高分子核材粒子表面に無電解または電解メッキにより膜状に被覆されているのが好ましい。導電材の膜厚は5~300nm、好ましくは10~200nmであるのが望ましい。特に下地としてニッケルメッキを施し、その上に金メッキを施したものが好ましく、この場合、ニッケル下地メッキの膜厚は10~300nm、好ましくは30~200nm、金メッキの膜厚は5~100nm、好ましくは10~30nmとするのが望ましい。

【0016】前記金属粒子または導電被覆粒子を被覆する絶縁性樹脂としては、前記絶縁性接着剤に不溶であり、熱圧着により被覆が溶融または破壊されて導電性を付与する絶縁性の樹脂が制限なく使用できるが、アクリル樹脂、スチレン樹脂またはアクリル/スチレン樹脂が好ましい。絶縁性樹脂は金属粒子または導電被覆粒子表面に膜状に絶縁被覆されているのが好ましく、特にアクリル樹脂架橋膜、スチレン樹脂架橋膜またはアクリル/スチレン樹脂架橋膜で絶縁被覆されているのが好ましい。絶縁性樹脂の膜厚は0.05~2μm、好ましくは0.1~0.5μmであるのが望ましい。

【0017】本発明で用いる平均粒径が異なる2種以上の導電粒子は、本発明の異方導電性接着剤または接着用膜を使用する際の接着温度、例えば200℃では熱変形を起こさず、接着する際の接着圧力、例えば400kg

f / c m²-バンプでは変形、特に弾性変形するものが 好ましい。具体的には、高分子核材粒子がスチレン樹 脂、アクリル樹脂、アクリル/スチレン樹脂またはペン ゾグアナミン樹脂の弾性を有する樹脂からなる導電粒子 が好ましい。

【0018】本発明では平均粒径の異なる2種以上の前記導電粒子を用いる。各導電粒子の平均粒径は1~10 μ m、好ましくは2~7 μ mであるのが望ましく、特にパンプ面積が4000 μ m²以下またはパンプ間が10 μ m以下の微小パンプのパンプと配線パターンとの接続に用いる場合は2~7 μ m、好ましくは3~6 μ mであるのが望ましい。平均粒径が1 μ m未満では粒子が二次凝集を起こしやすくなるほか、製造上の取扱が難しくなる。また10 μ mを超えると絶縁幅の狭い微細回路での絶縁性が低下する。

【0019】以下、2種類の導電粒子を用いた場合を例にして詳しく説明する。導電粒子の平均粒径の差は0. $5\sim 5~\mu$ m、好ましくは $1\sim 3~\mu$ mあるのが望ましい。バンプ面積が $4~0~0~0~\mu$ m²以下またはバンプ間隔が $1~0~\mu$ m以下の微小バンプのパンプと配線パターンとの接続に用いる場合、平均粒径が $3\pm 0.~5~\mu$ mの導電粒子と5 $\pm 0.~5~\mu$ mの導電粒子とを組み合せて用いるのが好ましい。

【0020】また平均粒径が小さい導電粒子の硬度は平 均粒径が大きい導電粒子の硬度と同等かそれ以上の硬度 を有しているのが好ましい。具体的には、平均粒径の小 さい導電粒子のK値は350kgf/mm2以上、好ま しくは500kgf/mm²以上であり、平均粒径の大 きい導電粒子のK値は450kgf/mm2以下、好ま しくは100~450kgf/mm²であって、平均粒 径の小さい導電粒子のK値が平均粒径の大きい導電粒子 のK値より相対的に大きいのが好ましい。特に、50k gf/mm²以上、好ましくは100kgf/mm²以上 大きいのが望ましい。平均粒径が3±0.5μmと5± 0. 5 μ mの 2 種類の導電粒子を用いる場合、 3 ± 0. 5 μmの導電粒子のK値は450 kg f/mm²以上、 好ましくは600kgf/mm 2 以上、5 \pm 0.5 μ m の導電粒子のK値は450kgf/mm²以下、好まし くは100~450kgf/mm²であって、K値の差 が50kgf/mm²以上、好ましくは100kgf/ mm²以上であるのが望ましい。

【0021】ここで、上記ド値について説明する。ランダウーリフシッツ理論物理学教程『弾性理論』(東京図書1972年発行)42頁によれば、半径がそれぞれR、R′の二つの弾性球体の接触問題は次式により与えられる。

【数1】

 $h = F^{2/3} [D^2 (1/R+1/R')]^{1/3} \cdots (1)$ $D = (3/4) [(1-\sigma^2)/E + (1-\sigma'^2)/E'] \cdots (2)$

(式中、hはR+R'と両球の中心間の距離の差、Fは 圧縮力、E,E'は二つの弾性球の弾性率、 σ , σ' は

弾性球のポアッソン比を表す。) 一方の球を剛体の板に 置き換えて他方の球と接触させ、かつ両側から圧縮する 場合、R′→∞、E≫E′とすると、近似的に次式が得

 $F = (2^{1/2}/3) (S^{3/2}) (E \cdot R^{1/2}) (1 - \sigma^2) \cdots (3)$

られる。

【数4】

(式中、Sは圧縮変形量を表す。)

【0022】ここで、次式によりK値を定義する。

 $K=E/(1-\sigma^2)$

式(3)と式(4)から容易に次式が得られる。

 $K = (3/\sqrt{2}) \cdot F \cdot S^{-3/2} \cdot R^{-1/2}$

このK値は球体の硬さ(硬度)を普偏的かつ定量的に表すものである。従って、K値により微粒子の硬さを定量的かつ一義的に表すことが可能である。

【0023】 K値は下記測定方法により測定することができる。平滑表面を有する鋼板の上に試料粒子を散布し、その中から1個の試料粒子を選ぶ。次に、粉体圧縮試験機(例えば、PCT-200型、島津製作所製)を用いて、ダイヤモンド製の直径50μmの円柱の平滑が端面で試料粒子を圧縮する。この際、圧縮荷重を電磁力として電気的に検出する。そして図1に示す圧縮変位として電気的に検出する。そして図1に示す圧縮変位一荷重の関係が求められる。この図から試料粒子の10%圧縮変形における荷重値と圧縮変位がそれぞれ求められ、これらの値と式(5)から図2に示すK値と圧縮変われ、これらの値と式(5)から図2に示すK値と圧縮をれているの関係が求められる。ただし、圧縮歪みは圧縮変位を試料粒子の粒子径で割った値を%で表したものである。測定条件は以下の通りである。

圧縮速度: 定負荷速度圧縮方式で毎秒0.27グラム 重(grf)の割合で荷重を増加させる。

R圧縮(回復率) = (L₂/L₁) × 1 0 0

測定条件は次の通りである。

反転荷重値: 1. Ogrf 原点荷重値: 0. 1grf

負荷および除負荷における圧縮速度: O. 27grf /sec

測定温度: 20℃

【0025】本発明の異方導電性接着剤中の導電粒子の含有量は、平均粒径の小さい導電粒子の含有個数が平均粒径の大きい導電粒子の含有個数より多いのが好ましい。具体的には、平均粒径の小さい導電粒子の含有量は、30000~8000個/mm²、好ましくは30000個/mm²、平均粒径の大きい導電粒子の含有量は、1000~30000個/mm²で対す。また平均粒径の小さい導電粒子含有量が発生しい。また平均粒径の小さい導電粒子含有量/平均粒径の大きい導電粒子含有量の比は、個数の比で1、1~8、好ましくは1、3~4であるのが望ましい。平均粒径が3±0、5μmと5±0、5μmの2種類の導電粒子を用いる場合も、上配含有量が好ましい。「0026】なお上配個数は、本発明の異方導電性接着剤から接着用膜を形成し、この膜(接続に使用する前の

【数2】

... (4)

試験荷重: 最大10grf

測定温度: 20℃

【0024】本発明で用いる導電粒子は、下配方法で測 定した1g荷重圧縮回復率(R)が5~80%、好まし くは30~80%であるのが望ましい。平滑表面を有す る鋼板の上に試料粒子を散布し、その中から1個の試料 粒子を選ぶ。次に、粉体圧縮試験機(例えば、PCTー 200型、島津製作所製)を用いて、ダイヤモンド製の 直径50μmの円柱の平滑な端面で試料粒子を圧縮す る。この際、圧縮荷重を電磁力として電気的に検出し、 圧縮変位を作動トランスによる変位として電気的に検出 する。そして、図3に示すように試料粒子を反転荷重値 まで圧縮した後(図中の曲線 a)、逆に荷重を減らして 行き(図中の曲線b)荷重と圧縮変位との関係を測定す る。ただし、除荷重における終点は荷重値ゼロではな く、 O. 1gの原点荷重値とする。圧縮回復率は反転の 点までの変位し1と反転の点から原点荷重値をとる点ま での変位差 L2の比を%で表した値で定義する。

... (5)

【数 5 】 ···(6)

膜) の単位面積当りの膜中に含まれる個数、すなわち膜 の表面における面積 1 mm²を底面とし、膜厚を高さと する直方体中に含まれる個数である。この場合、直方体 の側面で切断される導電粒子は1/2個と数える。な お、上記膜厚は接続に用いる膜の膜厚とする。従って、 導電粒子の密度をより大きくすると、膜厚をより薄くし た状態で使用することができ、逆に導電粒子の密度をよ り小さくすると、膜厚をより厚くした状態で使用するの が好ましい。平均粒径の大きい導電粒子および平均粒径 の小さい導電粒子を前記個数で含有している場合、接着 後のバンプ面上には、平均粒径の大きい導電粒子が、平 均-3σ(σは標準偏差を示す)で1個/1パンプ以 上、平均粒径の小さい導電粒子が、平均-3 ~で5個/ 1 パンプ以上通常存在する。なお導電粒子の膜中の含有 個数は、光学顕微鏡を用い、500倍の倍率で写真を撮 影し、200μm角中の粒子数を数え、その結果を1m m²に換算して求めることができる。

【0027】本発明で導電粒子として使用する前記絶縁 被覆導電粒子は、例えば次のような方法により製造する ことができる。まず前記高分子核材粒子の表層部分を公 知のハイブリダイゼーションシステムによる処理(以下 「ハイブリダイゼーション処理」という)によって改質する。ハイブリダイゼーション処理は、微粒子に微粒子を複合化するもので(例えば、粉体と工業VOL. 27, NO. 8, 1995, p35~42等参照)、母粒子と子粒子とを気相中に分散させながら、衝撃力を主体とする機械的熱エネルギーを粒子に与えることによって、粒子の固定化および成膜処理を行うものである。

【0028】図4は、ハイブリダイゼーション処理を施した高分子核材粒子の形態を模式的に示すものであり、図4(a)はシリコーンゴム粒子1aに対してニッケル粒子2を用いてハイブリダイゼーション処理を施したもの、図4(b)はベンゾグアナミン粒子1bに対してアクリル/スチレン粒子3を用いてハイブリダイゼーション処理を施したものを示す。

【0029】図4(a)に示すように、シリコーンゴム 粒子1aに対してニッケル粒子2を用いてハイブリダイゼーション処理を施した場合には、母粒子であるシリコーンゴム粒子1aの衷層部分に子粒子であるニッケル粒子2が埋め込まれるように改質され、改質高分子核材粒子5が得られる。

【0030】一方、図4(b)に示すように、ベンゾグアナミン粒子1bに対してアクリル/スチレン粒子3を用いてハイブリダイゼーション処理を施した場合には、母粒子であるペンゾグアナミン粒子1bの表層部分に子粒子であるアクリル・スチレン樹脂による薄膜4が形成されるように改質され、改質高分子核材粒子5が得られる。

【0031】次に、ハイブリダイゼーション処理した改質高分子核材粒子5を金属めっきすることにより、図4(c)に示すような、改質高分子核材粒子5表面が金属めっき6により被覆された導電被覆粒子7を得る。金属めっき6は公知の方法により行うことができるが、この場合改質高分子核材粒子5の表面は金属めっき6との密着性が向上するように改質されているので、従来の技術では困難であったシリコーンゴムからなる粒子1 aに対しても容易に金属めっき6を施すことができる。

【0032】次に上記導電被覆粒子7表面に絶縁性樹脂層8を形成し、絶縁被覆導電粒子9を得る。絶縁性樹脂層8を形成するには、前記ハイブリダイゼーション処理、静電塗装法、噴霧法、溶液塗布法、熱溶融被覆法、高速攪拌法など、公知の方法が採用できる。またアクリル樹脂架橋膜またはスチレン樹脂架橋膜などの絶縁性樹脂層9を形成する場合も、前記ハイブリダイゼーション処理などの方法により行うことができる。

【0033】本発明の異方導電性接着剤中には、前記導電粒子の他に、熱反応性樹脂類の硬化剤、シランカップリング剤、フィルム形成性樹脂等の他の成分を必要に応じ配合することができる。本発明の異方導電性接着剤は、絶縁性接着剤中に導電粒子および必要により配合する他の成分を配合し、均一に分散させることにより製造

することができる。

【0034】本発明の異方導電性接着剤は、相対峙する回路を電気的に接続するとともに接着固定するために用いられる。例えば、ICチップの接続端子と回路基板上の接続端子(配線パターン)とを接続するICチップ接続用、液晶パネルの接続端子と回路基板上の接続端子と回路基板上の接続開に用いるのが好ましく、特にICチップを直とびの接続に用いるのが好ましく、中でもバンプでマ起びの接続に用いるのが好ましく、中でもバンプでディンでの接続に用いるのが好ましい。パンプの大きさは特に限定されないが、4000μm²以下であるのが好ましい。このような小さいパンプを接続する場合でも、高精度のバンプを作成する必要はない。

【0035】接続は、温度150~250℃、好ましくは180~220℃、圧力50~3000kgf/cm²-バンプ、好ましくは100~1500kgf/cm²-バンプ、時間2~30秒、好ましくは3~20秒の条件で圧着して行うのが望ましい。

【0036】接続後は、相対峙する回路同士は導通性が確保され、また隣接するバンプ間または配線パターン間では絶縁性が確保されるので、電気的異方性が維持された状態で接着固定することができる。

【0037】本発明の異方導電性接着用膜は前配異方導 電性接着剤からなるフィルムである。膜厚は特に限定さ れないが、通常5~200μm、好ましくは10~10 0 μ mとするのが望ましい。バンプを有する I C チップ の接続に使用する場合は、接続を行うICチップのバン プ髙さと、回路基板上の配線パターンの高さとを合せた 厚みに対して1~3倍、好ましくは1~2倍の膜厚を有 する接着用膜を使用するのが好ましい。膜厚が上記値よ り大きい場合、圧着の際にバンプと配線パターンとの間 から排除される接着剤の量が多くなるので、パンプと配 線パターンとの間に保持される導電粒子が減少する。保 持量を多くするため導電粒子の配合量を多くすることも できるが、この場合コスト高になる。また排除された接 **着剤によりプレスヘッドが汚れるなど、作業性が低下す** る。一方膜厚が上記値より小さいと、圧着の際にパンプ 間または配線パターン間に接着剤が行き渡らず、接着力 が低下する場合がある。本発明の異方導電性接着用膜中 に含まれる導電粒子の個数は前記接着剤中の個数と同じ であるのが好ましい。

【0038】本発明の異方導電性接着用膜は単層であってもよく、片面または両面に1層以上の他の層が積層されていてもよい。他の層を積層することにより、接続

(接着)の際に電極からの導電粒子の流出を防止することができる。また最外層に保管および取扱いを容易にするためのカパーフィルムを積層することもできる。

【0039】本発明の異方導電性接着用膜は前記接着剤

と同様の用途に使用することができ、同様にしてICチップ等の接続端子と回路基板上の接続端子とを接続することができる。

【0040】本発明の異方導電性接着剤および接着用膜は、平均粒径の異なる2種以上の導電粒子を含有しているので、導電粒子の凝集を防止して配合量を多くすることができ、これによりパンプまたはピッチの小さいICを接続する場合でも、ショートや回路パターンへのダメージを与えることなく、高い導通信頼性と高い絶縁信頼性を確保した状態で容易に低コストで接続することができる。

【0041】このような異方導電性接着剤および接着用膜の中でも、導電粒子が加圧により変形し、しかも平均粒径の大きい導電粒子の硬度が平均粒径の小さい導電粒子の硬度と同等かそれ以下の場合、圧着の際に平均粒径の大きい導電粒子がまず変形して相対峙する回路同士を導通させ、続いて平均粒径の小さい導電粒子も変形して回路同士を導通させるので、より高い導通信頼性が得られるので好ましい。この場合でも、隣接するバンプ間または配線パターン間は、絶縁性樹脂および絶縁性接着剤により高い絶縁信頼性が維持される。このように本発明においては、粒径の大きい粒子により圧着の際の厚みが制御されることはない。

[0042]

【発明の効果】本発明の異方導電性接着剤は、絶縁性接着剤中に絶縁被覆された平均粒径の異なる2種以上の導電粒子を含有しているのでパンプまたはピッチの小さい」Cを接続する場合でも、ショートや回路パターンへのダメージを与えることなく、高い導通信頼性と高い絶紀は現性が得られ、しかも低コストで容易に接続することができる。本発明の異方導電性接着用膜は上記接着剤からなっているので、ピッチの小さい」Cを接続する場合でも、ショートや回路パターンへのダメージを与えることなく、高い導通信頼性と高い絶縁信頼性が得られ、しかも低コストで容易に接続することができ、しかもてコストで容易に接続することができ、しかもので取扱性および作業性に優れている。

[0043]

【発明の実施の形態】本発明の異方導電性接着用膜を用いて I Cチップを接続した実施の形態を図面を用いて説明する。図5は、本発明の異方導電性接着用膜を用いて I Cチップを回路基板上に直接フリップチップボンディング方式により接続した垂直断面模式図であり、10は異方導電性接着用膜で、平均粒径の小さい導電粒子11と平均粒径が大きい導電粒子12とが絶縁性接着剤13中に分散している。14は I Cチップであって、パンプ15が形成されている。16は回路基板であって、記線パターン17が形成されている。導電粒子11、12は高分子核材粒子表面に金属めっき層が形成され、さらに絶縁樹脂層で被覆されているが、これらの層の図示は省略されている。

【0044】図5において、1Cチップ14に形成され ているパンプ15と回路基板16上の配線パターン17 とは、導電粒子11、12上の金属めっき層(図示せ ず)により導通され、かつ | Cチップ14と回路基板1 6とは絶縁性接着剤13により接着、固定されている。 【0045】図5のようにICチップ14と回路基板1 6とを接続するには、ICチップ14と回路基板16と の間に異方導電性接着剤用膜10を介在させた状態で、 パンプ15と配線パターン17とを上下に相対峙するよ うに配置し、この状態で上下方向に加圧するとともに加 熱して熱圧着する。これにより、まずバンプ15と配線 パターン17との間に存在する平均粒径の大きい導管粒 子12表面の絶縁性樹脂層が軟化ないし溶融あるいは破 壊するとともに粒子が変形し、絶縁性樹脂層がパンプ 1 5および配線パターン17の接触部から排除され、金属 めっき層によりバンプ15と配線パターン17とが導通 する。続いて、平均粒径の小さい導電粒子11において も、上配平均粒径の大きい導電粒子12の場合と同様に してパンプ15と配線パターン17とが導通される。こ のように、本発明の異方導電性接着用膜10において は、平均粒径の大きい導電粒子12および平均粒径の小 さい導電粒子11の両方によりパンプ15と配線パター ン17とが導通するので、高い導通信頼性が得られる。 この場合においても、隣接する導電粒子11、12間は 絶縁性樹脂層および絶縁性接着剤13により絶縁性が確 ... 保される。

【0046】このように、異方導電性接着用膜10を用いることにより、1Cチップ14と回路基板16との接着固定、バンプ15と配線パターン17との導通、および隣接回路間の絶縁を同時にしかも簡単に低コストで行うことができる。しかも本発明の異方導電性接着用膜10は、平均粒径の異なる導電粒子11、12を含有しているので、バンプ15面積が小さい場合やバンプ15の間隔が狭い場合でも、ショートや回路パターンへのダメージを与えることなく、高い導通信頼性と高い絶縁信頼性が得られる。

[0047]

【実施例】次に本発明の実施例について説明する。 実施例1

絶線性接着剤としてエポキシ系樹脂組成物(高分子量ビスフェノールA系エポキシ樹脂33.3重量%、ナフタレン系エポキシ樹脂33.3重量%およびビスフェノールF系エポキシ分散型潜在性硬化剤33.3重量%を含む組成物)を用い、この絶縁性接着剤中に下配平均粒径3μmおよび5μmの2種類の導電粒子を配合し、異方導電性接着剤を調製した。

【0048】上記平均粒径3μmの導電粒子としては、ベンゾグアナミン樹脂からなる高分子核材粒子にAu/Niめっきを施し、さらにその表面を約0.3μmの膜厚のアクリル/スチレン樹脂架橋膜で絶縁コートした導

電粒子(以下、B粒子と略配する)を用いた。なおアクリル/スチレン樹脂架橋膜による絶縁被覆は、ハイブリダイゼーションシステムによる処理によって行った。このB粒子の配合量は30000個/mm²とした。

【0049】前記平均粒径5μmの導電粒子としては、アクリル/スチレン樹脂からなる高分子核材粒子にAu/Niめっきを施し、さらにその表面を約0.3μmの膜厚のアクリル/スチレン樹脂架橋膜で絶縁コートした導電粒子(以下、LL粒子と略配する)を用いた。

【0050】前配異方導電性接着剤をフィルム成形し、 膜厚75μmの単層の異方導電性接着用膜を得た。この 膜中のLL粒子の配合量は、単位面積当りの膜中に含有 される個数として20000個/mm²であった。この 異方導電性接着用膜を用いて、下配のようにして I Cチップの導通評価および絶縁評価を行った。

【0051】《導通評価》

表 1

I C チップ: 100μ m× 100μ m角パット上にスタッドパンプを立て、パンプ面積 1000、2000、3000、4000または 5000μ m 2 となるように平坦化処理を行い、評価用 I C を作成した。パンプ高さはいずれも約 40μ m、I C サイズは 6 mm× 6 mmである。

基板: B T 樹脂 0. 7 mm厚の基板上に、18μm厚の C u および A u めっきで配線パターンを形成した基板。 配線パターン間のピッチは150μm。

【 $005^{\circ}2$ 】上記 | Cチップと基板との間(バンプ高さと配線パターンの高さとの合計は約 $58\mu m$)に前記異方導電性接着用膜を介在させた状態で、温度 200° 、圧力400kg f $/cm^2-$ バンプの条件で20秒間加

熱加圧し、圧着して接続した。この接続サンプルを240℃、リフロー2回通した後、121℃、2. 1 a t m 飽和プレッシャークッカーテスト(PCT)100Hr 後の抵抗上昇値で導通信頼性を評価した。結果を表1に示す。

O:抵抗上昇 0.1Ω以下

Δ:抵抗上昇 0.1Ωを超え0.3以下

×:抵抗上昇 0.3Ωを超える

【0053】《絶縁評価》

| Cチップ: バンプサイズ= $70 \mu m \times 100 \mu m$ 、スペース= $10 \mu m$ 、バンプ髙さ= $20 \mu m$ 、| Cサイズ= $6 mm \times 6 mm$

基板:ガラス上にITO(Indium Tin 0xide)で配線パターンを作成した透明基板、ピッチ=80 μ m、ライン=70 μ m、スペース=10 μ m。ショートの発生の有無を顕微鏡で確認するため透明基板を使用。

【0054】上記ICチップと基板とを導通評価の場合と同様にして接続した。この接続サンプルを85℃、85%RH、1000Hrエージングした後、隣接する2ピン間に25V、1min印加し、絶縁抵抗を評価した。結果を表1に示す。

O:108Ω以上

×:108Ω未満

【0055】実施例2~5、比較例1~8

実施例1の導電粒子の種類および配合量を表1または表2に示すように変更した以外は実施例1と同様にして行った。結果を表1または表2に示す。

[0056]

【表1】

| | | 比較例1 | 比較例2 | 比較例3 | 英施例1 | 実施例 2 | 実施例3 | 実施例 4 |
|------------------------|-------------|-------|--------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 導電粒子の種類 | 3 µ m | В | В | | В | В | В | LL |
| | 5 µ m | | | В | LL | LL | В | LL |
| 導電粒子の含有量 | 3 µ m | 40000 | 40000 | _ | 30000 | 40000 | 30000 | 30000 |
| (個/mm²) | 5 μ m | _ | _ | 40000 | 20000 | 30000 | 20000 | 20000 |
| 導電粒子のK値 | 3 4 15 | 1081 | 1081 | - | 1081 | 1081 | 1081 | 397 |
| (kgf/mm ²) | 5 µ m | | | 1081 | 397 | 397 | 1081 | 397 |
| 導電粒子の圧縮 | 3 µ m | 4 1 | 4 1 | - | 4 1 | 4 1 | 4 1 | 5 1 |
| 回復率R (%) | ôμm | _ | - | 3 8 | 48 | 4 8 | 38 | 48 |
| 絶縁コートの有無 | 3 µ m | 無 | 有 | | 有 | 有 | 有 | 有 |
| | 5 µ m | - | _ | 有 | 有 | 有 | 有 | 有 |
| 接着用膜 膜厚 | (µm) | 7 5 | 75 | 7 5 | 7 5 | 7 5 | 7.5 | 7 5 |
| 形態 | | 2層 *1 | 2周 * 2 | 1 屆 | 1層 | 1 層 | 1 居 | 1層 |
| 導通評価に用いた! パンプ面積 () | (CØ (m²) | 3000 | 3000 | 3000 | 3000 | 1000 | 3000 | 3000 |
| 導通信製性 | | Δ | Δ | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 船業信額性 | | × | 0 | × | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 接着時の作業性 | | 良好 | 良好 | 良好 | 良好 | 良好 | 良好 | 良好 |

| - | 2 |
|---|---|
| | |

| | | | 比較例4 | 比較例6 | 比較何6 | 実施例5 | 比較別7 | 比較何8 |
|--------------------|-----|-------------|-------|------------|-------|-------|------------|-------|
| 導電粒子の | 種類 | 3 µ m | LL | В | В | В | В | В |
| | | 5 µ m | В | LL | L L | LL | LL | LL |
| | | 3 µ m | 30000 | 30000 | 30000 | 30000 | 10000 | 30000 |
| | | 5 µ m | 20000 | 20000 | 20000 | 20000 | 20000 | 10000 |
| 導電粒子の | K 位 | 3 µ m | 397 | 1081 | 1081 | 1081 | 1081 | 1081 |
| (kgf/mm²) | | 5 μ m | 1081 | 397 | 8 9 7 | 397 | 397 | 397 |
| 導電粒子の圧縮 回復率R(%) | | 3 μ m | 5 1 | 4.1 | 4 1 | 4 1 | 4 1 | 4 1 |
| | | 5 μ m | 38 | 4.8 | 4.8 | 4 8 | 48 | 4 8 |
| 絶縁コートの有無 | | 3 µ m | 有 | 有 | 有 | 有 | 有 | 有 |
| | | 5 µ m | 有 | 有 | 有 | 有 | 有 | 有 |
| 接着用膜 | 膜厚 | (µm) | 7 5 | 250 | 50 | 7 5 | 7.5 | 7 5 |
| | 形態 | | 1 層 | 1 届 | 1.79 | 2暦 *3 | 2 Æ | 2周 |
| 導過評価に パンプ面積 | | ICO um²) | 3000 | 3000 | 3000 | 3000 | 3000 | 3000 |
| 導通信類性 | | Δ | 0 | Δ | 0 | Δ | Δ | |
| 絶縁信額性 | | 0 | 0 | 0 | · 0 | 0 | 0 | |
| 接着時の作業性 | | 良好 | * 4 | + 5 | 良好 | 良好 | 良好 | |

【0058】 表1 および表2の注

* 1 導電粒子を含む膜厚 25μ mの異方導電性接着用膜に、膜厚 50μ mの導電粒子を含有しない膜を積層したもの。この2層化接着膜は導電粒子を含む面を基板側にして使用。

- *2 *1と同じ
- *3 *1と同じ
- * 4 ハミ出し多く、プレスヘッドを汚す
- *5 スペースをつめられなく接着力が低下し、剥離 【0059】試験例1

実施例1で用いたエポキシ系樹脂中に下記導電粒子を所定量配合して異方導電性接着剤を調製した。平均粒径5μmのベンゾグアナミン樹脂からなる高分子核材に、Au/Niめっきを施し、さらにその表面を膜厚0.3μmのアクリル/スチレン樹脂で絶縁コートしたB粒子。

【0060】上記接着剤をフィルム成形して膜厚 75μ mの単層の接着用膜を得た。この接着用膜を用いて、バンプ面積が $1000~5000\mu$ m 2 の | Cチップの接続を実施例1と同様にして行った。

【0061】接着後、200℃にICチップを加熱して 剥離し、バンプおよび基板上の粒子数を数え、合計した 粒子数をバンプ上に存在していた粒子数としてカウント し、バンプ面上の導電粒子の平均数を求め、さらに平均 数と3 σ (σは標準偏差である)との差を求めた。この 差と異方導電性接着用膜中の導電粒子数との関係を図6 に示す。また導電粒子数が2000個/mm²または 30000個/mm²の接着用膜におけるバンプ面積と バンプ上の導電粒子数との関係を図7に示す。

【0062】図6からバンプ面積が3000 μ m²以下の I Cチップの接続においては、バンプ上に確実に5個の粒子を存在させるためには、30000個 ℓ mm²以上の粒子が必要であり、また1000 μ m²では40000個 ℓ mm²以上の粒子が必要であることがわかる。

【0063】図7から、バンプ上に必ず5個以上の粒子を存在させるには、20000個/mm 2 の異方導電性接続用膜ではバンプ面積が5000 μ m 2 以上必要であり、30000個/mm 2 の異方導電性接着用膜ではバンプ面積が3000 μ m 2 以上必要であることがわかる。

【図面の簡単な説明】

【図1】導電粒子の圧縮変位と荷重との関係を示すグラフである。

【図2】導電粒子の圧縮歪みとK値との関係を示すグラフである。

【図3】導電粒子の負荷時および除負荷時の圧縮変位と 荷重との関係を示すグラフである。

【図4】(a)は高分子核材粒子と金属粒子とをハイブリダイゼーション処理した場合の高分子核材粒子の改質状態を示す断面模式図、(b)は高分子核材粒子と樹脂粒子とをハイブリダイゼーション処理した場合の高分子核材粒子の改質状態を示す断面模式図、(c)は改質高分子核材粒子を金属めっきした状態を示す断面模式図、

(d)は(c)の粒子を絶縁性樹脂で被覆した状態を示す断面模式図である。

【図5】本発明の異方導電性接着用膜を用いてバンプと 配線パターンとを接続したときの状態を示す垂直断面模 式図である。

【図6】異方導電性接着用膜中の導電粒子数に対するパンプ上の導電粒子が存在する確率を示すグラフである。

【図7】バンプ面積に対するバンプ上の導電粒子数の確率を示すグラフである。

【符号の説明】

- 1a シリコーンゴム粒子
- 1 b ペンゾグアナミン粒子
- 2 ニッケル粒子
- 3 アクリル/スチレン粒子

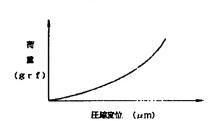
- 4 薄膜
- 5 改質高分子核材粒子
- 6 金属めっき
- 7 導電被覆粒子
- 8 絶縁性樹脂層
- 9 絶縁被覆導電粒子
- 10 異方導電性接着用膜

- 11 平均粒径の小さい導電粒子
 - 12 平均粒径の大きい導電粒子
 - 13 絶緣性接着剤
 - 14 ICチップ
- 15 パンプ

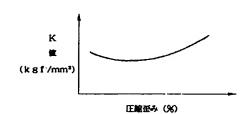
and the second second second second second second

- 16 回路基板
- 17 配線パターン

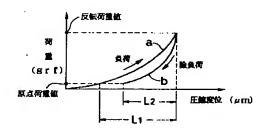
【図1】



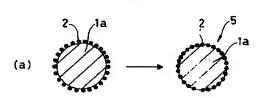
【図2】

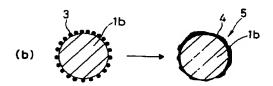


【図3】



【図4】



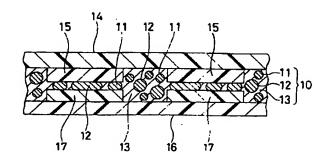




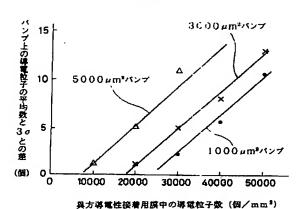
(d)

- 1a シリコーンゴム粒子
- 1 b ベンソグアナミン粒子
- 2 ニッゲル粒子
- 3 アクリル/スチレン粒子
- 4 薄膜
- 5 改置高分子技材粒子
- 6 分型めった
- 7 導電被聚粒子
- **名 基基性期限**
- 9 经基础管理管理

【図5】

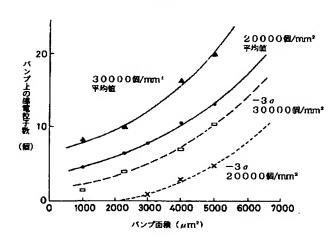


【図6】



- 10 具方導電性接着用膜
- 11 平均粒径の小さい導電粒子
- 12 平均粒径の大きい導電粒子
- 13 純緑性接着剂
- 14 [C+y7
- 15 パンプ
- 16 回路基板
- 17 配線パターン

【図7】



フロントページの続き

(72) 発明者 武市 元秀 栃木県鹿沼市さつき町12-3 ソニーケミ カル株式会社内

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

□ BLACK BORDERS
□ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
□ FADED TEXT OR DRAWING
□ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
□ SKEWED/SLANTED IMAGES
□ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
□ GRAY SCALE DOCUMENTS
□ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
□ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.